

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 01-093062

(43)Date of publication of application : 12.04.1989

(51)Int.Cl.

H01M 8/02

(21)Application number : 62-248506

(71)Applicant : ISHIKAWAJIMA HARIMA HEAVY IND
CO LTD
NIPPON KINZOKU KOGYO KK

(22)Date of filing : 01.10.1987

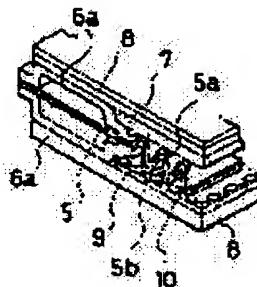
(72)Inventor : KOGA MINORU
HOTTA MINORU
HIRATA TETSUYA
INOUE SHOGO
TAKEDA SEIICHI
KATO HORYU

(54) MANUFACTURE OF SEPARATOR FOR FUEL CELL

(57)Abstract:

PURPOSE: To decrease deformation in a working process and to reduce cost by forming a separator with a nickel-stainless steel clad material, having a specified cladding ratio, in which pure nickel or high nickel steel is formed to fuel gas side and chromium-nickel stainless steel is faced to oxidizing gas side.

CONSTITUTION: A separator 5 is made of nickel stainless steel clad material having low nickel ratio, and its nickel side 5a is faced to an anode 7 and the stainless steel side 5b is faced to a cathode 10. The separator 5 is formed by the explosion bonding or welding of a nickel plate and a stainless steel plate and by rolling them to form a thin clad plate and by pressing. Although deformation arises by the difference of rolling property of each material, by limiting the cladding ratio of nickel to stainless steel to 0.2~20%, deformation in rolling is decreased. The yield of the clad material is increased and in addition, cost is reduced by thinning the nickel plate.



LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

③ 公開特許公報 (A) 平1-93062

④ Int.Cl.⁴
H 01 M 8/02識別記号 廈内整理番号
R-7623-5H
B-7623-5H

⑤ 公開 平成1年(1989)4月12日

審査請求 未請求 発明の数 1 (全5頁)

⑥ 発明の名称 燃料電池用セパレーターの製造方法

⑦ 特願 昭62-248506

⑧ 出願 昭62(1987)10月1日

⑨ 発明者 古賀 実 東京都江東区豊洲3丁目1番15号 石川島播磨重工業株式会社技術研究所内

⑩ 発明者 堀田 実 東京都江東区豊洲3丁目1番15号 石川島播磨重工業株式会社技術研究所内

⑪ 発明者 平田 哲也 東京都江東区豊洲3丁目1番15号 石川島播磨重工業株式会社技術研究所内

⑫ 出願人 石川島播磨重工業株式会社 東京都千代田区大手町2丁目2番1号

⑬ 出願人 日本金属工業株式会社 東京都新宿区西新宿2丁目1-1

⑭ 代理人 弁理士 脇谷 信雄

最終頁に続く

明細書

[従来の技術]

1. 発明の名称

燃料電池用セパレーターの製造方法

2. 特許請求の範囲

燃料電池を積層すべくアノード電極とカソード電極間に介設し、アノード側に燃料ガスを、カソード側に酸化ガスの流路を形成する燃料電池用セパレーターの製造方法において、該セパレーターの燃料ガス側を純ニッケル又は高ニッケル鋼、酸化ガス側をクロムニッケル鋼からなるクラッド材で該セパレーターのクラッド比（Ni板厚／金板厚）が0.2～20%に形成させた後、プレス加工により流路を形成させることを特徴とする燃料電池用セパレーターの製造方法。

3. 発明の詳細な説明

[産業上の利用分野]

本発明は薄膜燃焼型の燃料電池に係り、特に燃料電池本体を積層する燃料電池用セパレーターの製造方法に関するものである。

燃料電池の原理は、水の電気分解の逆の反応であり、燃料中の水素と空気中の酸素とを化学的に反応させて、電気と水とを同時に取り出すものである。

これを第2図により説明すると、燃料電池本体1は水素などの燃料ガスを反応させる多孔質のアノード電極（燃料板）2と、酸化ガスを反応させるカソード電極（空気板）3と、この両電極2、3間に介在する炭酸塩からなる電解質4とからなっており、図示のようにアノード電極2へ水素を含む燃料ガスが供給され、他方カソード電極3へ酸素と炭酸ガスを含む酸化ガスが供給されることになり各電極2、3内で図示のように反応し炭酸イオン(CO_3^{2-})を媒介に水素と酸素が反応して発電が行なわれる。

この燃料電池本体1は、セパレーターにて多数多段に積層され高出力が得られるうになっている。セパレーターは積層する一方の電池本体1のアノード電極2へ燃料ガスを供給する流路と、他方の電

池本体1のカソード電極3間に酸化ガスを供給する複路が形成され、電池本体1をセパレータを介して積層することで、各層で燃料ガスと酸化ガスの流路を形成するようになっている。

【発明が解決しようとする問題点】

ところで、溶融炭酸塩型燃料電池は800℃以上の高温空気下で水と酸素とを反応させて発電を行なうため、セパレータは高温腐食環境下にある。すなわち、片面が還元空気下(燃料ガス)にあり、他面が酸化空気下(酸化ガス)にあり、セパレータは高温空気下でその両面から酸化と還元作用を受けることとなり、現在この両環境下に耐え、かつコストの安い单一金属は見出されていない。セパレータは積層により、その上下の電池を接続すべく導電機能を有し電子伝導性が要求されるため金属で形成するのがよいが、上述のように両環境に耐え得る金属は見出されていない。現在までの腐食基礎試験から燃料ガス側はニッケル、酸化ガス側はステンレス鋼又はアロイ800などの材料が有望である。

【作用】

上記の構成によれば、Niはアノード側では熱力学的に安定であり、かつNi/SUSクラッド鋼のためプレス加工時の変形が少なく、かつコストも低廉できる。

【実施例】

以下本発明の燃料電池用セパレータの製造方法の好適一実施例を添付図面に基づいて説明する。

まず、第2図により溶融炭酸塩型燃料電池を説明する。

第2図は分解組立図を示し、図において、5は後述する本発明のセパレータで、その上下にウェットシールフレーム6a, 6bが重合される。この上部の燃料ガス側ウェットシールフレーム6a内には多孔質板からなるアノード電極7がそのセパレータ5に重ねられると共に、その上部に炭酸塩からなる電解質タイル8が重ねられる。また下部の酸化ガス側ウェットシールフレーム6b内には、パンチ板9を介して多孔質板からなるカソード電極10が重ねられると共に電解質タイル8が

そこで、Niメッキによるメッキ板にてセパレータを構成することが検討されているが、剥離現象及びクラックが入りやすく燃料電池の燃料側(ニッケルメッキ側)では充分な耐食性を示さない問題がある。

本発明は上記事情を考慮してなされたもので、高温空気下で燃料ガスと酸化ガスの流路を形成すると共に、その耐食性が良好な燃料電池用セパレータの製造方法を提供することを目的とする。

【問題点を解決するための手段】

本発明は上記の目的を達成するために、燃料電池を積層すべくアノード電極とカソード電極間に介設し、アノード側に燃料ガスを、カソード側に酸化ガスの流路を形成する燃料電池用セパレータの製造方法において、該セパレータの燃料ガス側を純ニッケル又は高ニッケル鋼、酸化ガス側をクロムニッケル鋼からなるクラッド材で該セパレータのクラッド比(Ni板厚/全板厚)が0.2~20%に形成させた後、プレス加工により流路を形成させるものである。

重ねられる。またこの下方の電解質タイル8の下方にはアノード電極7が重ねられ、また上方の電解質タイル8の上方にはカソード電極10が重ねられ、以後同様に順次重ねられ、第1図に示したように積層される。

セパレータ5は、その上部に図示の実線で示した燃料ガス流路11と、下部に図示の点線で示した酸化ガス流路12とを形成すべくコルゲート状の溝部13を有する。また、上下のウェットシールフレーム6a, 6bは、断面コ字状の枠で形成され外周がセパレータ5にシーム溶接又はレーザー溶接部はカシメなどにより接合されると共に、大々セパレータ5の各流路11, 12に燃料ガスと酸化ガスとを給排する孔13a, 13bを有する。また電解質タイル8、ウェットシールフレーム6a, 6b及びセパレータ5の四隅には燃料ガスと酸化ガスの給排のための孔14が形成される。

さて、セパレータ5は、低Ni比率のクラッドNi/SUS材が使用され、第1図に示すようにNi層5aがアノード電極7側に、またSUS層5bがカソード

ド電極 10 個に位置するように設けられる。

このセパレータは Ni 板と SUS 板とを、接着又は溶接により厚いスラブを作り、これを順次圧延をくり返し、薄板クラッド材とし、これをプレス加工して図示の形状に形成するものである。

この場合、Ni 及び SUS 材の圧延特性の相違により変形を生じ、Ni/SUS クラッド材の薄板にしたときの歩留りが低下する。そして、Ni/SUS クラッド材のクラッド比を 0.2 ~ 20% にすることにより圧延時の変形が少なくなり、Ni/SUS 材のクラッド鋼歩留りが向上できると共に、Ni の厚さが薄くなるため Ni/SUS クラッド材のコストダウンを計ることができる。

これをさらに説明する。

SUS の Ni の片面クラッド鋼を製造するに当っては、その製造の難易性、経済性はクラッド鋼の全厚さに対する Ni の厚さ比率が大いに関係する。その理由は 2 つある。すなわち、

① SUS と Ni とは熱膨張係数が異なるために、クラッド鋼製造過程における加熱および冷却時に、

て、板幅 1 m、板厚 0.4 mm、加工度 80% とし、焼純時の炉内設定温度を 1150°C とし、夫々クラッド比を変えた場合の反り高さの変化を示した。

第 3 図から判るように、クラッド比が大きくなるほど反り高さも大きくなり、クラッド比約 30% 以上となるとライン焼純炉の天井によつかるようになる。

第 4 図は冷間圧延時の圧延率に対する反りの曲率半径の関係を示し、夫々クラッド比 (5, 10, 30, 40%) を変えて求めたものである。この場合、圧延前の素材全厚さ 4.0 mm、圧延ロール径 50 mm で行った。この第 4 図から判るように圧延率が高くなると曲率も大きくなり、特にクラッド比が高いほど、その傾向が高くなる。第 4 図は実験的な値であるが、実際の製造現場での圧延では反りが大きくなると圧延ができなくなり、これらのデータより、SUS 材と同程度の難易度で製造可能なクラッド比は 10% 程度までであり、20% を越えると工程数が増加し、製造の困難度も急激に大きくなる。

Ni の厚さ比率の下限は製造上は特別に明確な限

この熱膨張差で変形を起しやすい。このため、熱間圧延においてはロールの噛み込みが往々にしてむずかしくなり、圧延の成功率は低下する。また、熱処理時に反りにより加熱炉の炉壁や天井と接触する等のトラブルを発生しやすい。

② SUS と Ni とは熱間および冷間圧延において変形抵抗に大きな差があり、Ni の方が延びやすい。このため、圧延による反り、曲りを出しやすく、熱間圧延においてはミスロールになる確率が高い。また冷間圧延においては、圧延形状の悪化による圧延の難易の不備、そして圧延が可能であっても最終酸洗ラインにおける過吸が不可能になることがある。

これらの対策として、全厚さに対する Ni の厚さ比率を小さくすることが有効である。すなわち Ni の厚さ比率をある範囲内に納めれば、熱膨張係数、塑性変形いずれも SUS の影響が支配的になり SUS 単独の挙動に近くなる。

第 3 図は Ni の厚さ比率と焼純時の反り高さの関係を示す。この場合、Ni/SUS304 クラッド鋼とし

界はないが、比率が余りに小さいと Ni の酸化ロスや製造過程における皮の除去工程で下地である鋼の露出が起る可能性が生じ、クラッドの品質上、不安定なものとなる。このため、20% 以下の厚さの板に対し、Ni 厚さを全厚さの 0.2 % 以上とすることが必要である。

以上により、Ni の厚さの比率の範囲をクラッド鋼全厚さの 0.2 ~ 20% とする。

このクラッド材 0.2 ~ 20% の Ni/SUS クラッド材をセパレータの材料として用いることで、上述のように圧延に支障がなくなると共にセパレーターのアレス加工時のアレス加工変形が少くなり、平面度のよいセパレータとすることができる。

また反りの小さなクラッド材はアレス加工時の金型へのセットが容易に行なえる。

このセパレータは Ni/SUS クラッド材を用いる例で説明したが、使用する SUS としては、SUS304L, SUS316L, SUS310S 等を用いる。また、SUS の INCOLLOY825 或いは耐熱鋼でもよく、要は低 Ni のニッケルクロム鋼であればいかなるものでもよい。

特開平1-93062(4)

また、NI側は純ニッケルの他ニッケル含有率の高いものであれば使用できる。

また、NI/SUSクラッド材を圧延する例で説明し、その場合のクラッド比を0.2～20%とする例で説明したが、NI側とSUS側を予めセパレータ形状に形成すると共に、これを直接接合するように形成してもよい。

なお、ウェットシールフレーム6a, 6bはプレス加工により成形されるが、その材質としてアロイ800又はSUS材等が有望である。また、電解質タイル8との接触部は溶融炭酸塩で覆れるため、表面にアルミナイジング処理などの耐食コーティングを施す。さらに、カソード電極10はNI多孔質で形成するが酸化ガス及び炭酸塩により半導体化するが、厚すぎると電気抵抗が大きくなるため、薄くする必要がある。従って機械的強度が必要な場合には、図示のパンチ板9にて補強するが、必ずしも、このパンチ板9を設ける必要はない。また、アノード電極7はNI多孔質であり炭酸塩の貯蔵機能を有するため板厚は厚い方がよい。

4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明のセパレータを用いた燃料電池の要部断面図、第2図は第1図の分解組立図、第3図は本発明においてクラッド比に対する反りの関係を示す図、第4図は本発明において冷間圧延時の圧延率に対する曲率の関係を示す図、第5図は溶融炭酸塩型燃料電池の原理を示す図である。

図中、5はセパレータ、5aはNI側、5bはSUS側、7はアノード電極、8は電解質タイル、10はカソード電極である。

特許出願人 石川島播磨重工業株式会社
日本金属工業株式会社
代理人弁理士 細谷信雄

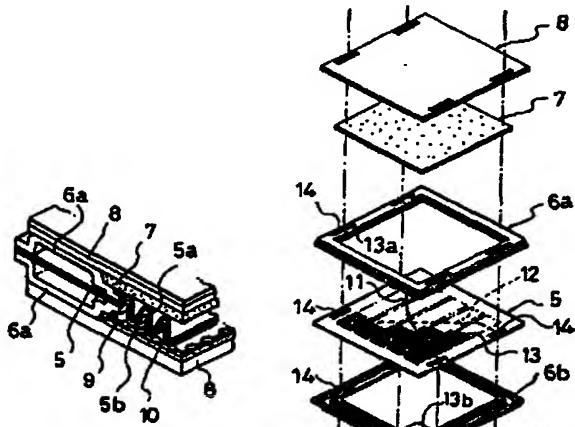
この場合、充分な機械的強度を有するのでパンチ板材等による補強は不要である。さらに上下のウェットシールフレーム6a, 6b内に両電極7, 10及び電解質タイル8をセットすることで電極周辺部の溶融炭酸塩の漏洩やタイルにクラックが入ることを防止できる。

【発明の効果】

以上説明してきたことから明らかかなように、本発明によれば次のとおり優れた効果を發揮する。

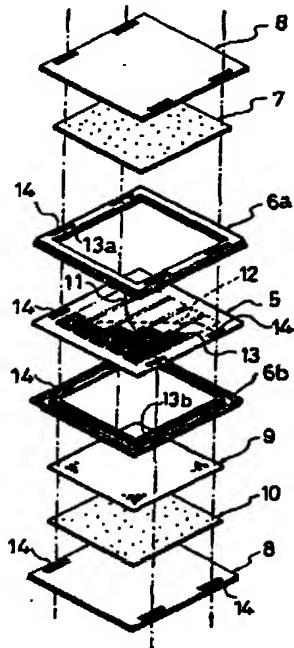
(i) セパレータを純ニッケル（或いは高ニッケル）とオーステナイト系クロムニッケル鋼からなるクラッド材にて形成し、このニッケル側をアノード電極側にオーステナイト系クロムニッケル鋼側をカソード電極側に位置させることで、高温雰囲気下で燃料ガス及び酸化ガスに接しても良好な耐食性を有するものとすることができる。

(ii) セパレータをクラッド材とすることでのNI側の剥離やクラックなどが生じない。

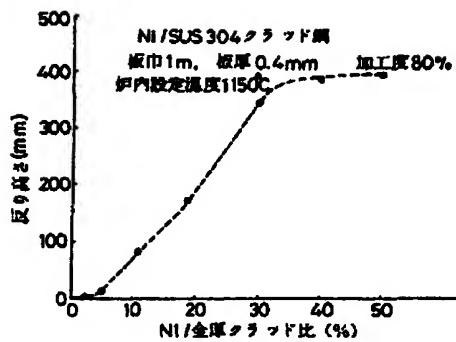


第1図

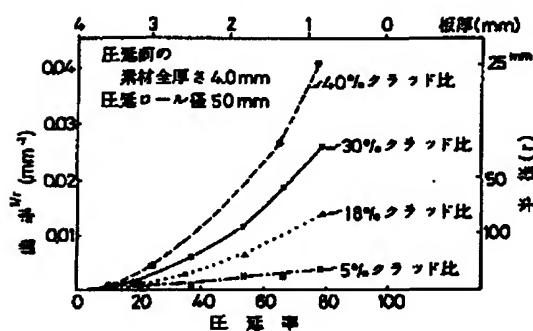
5 セパレータ
5a NI側
5b SUS側
7 アノード電極
8 電解質タイル
10 カソード電極



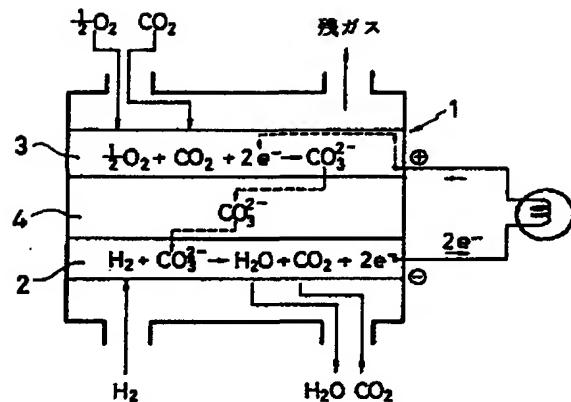
第2図



第3図



第4図



第5図

第1頁の続き

②発明者 井上 章吾 東京都新宿区西新宿2丁目1-1 日本金属工業株式会社
内

②発明者 竹田 誠一 神奈川県相模原市大山町1番30号 日本金属工業株式会社
相模原製造所内

②発明者 加藤 方隆 神奈川県相模原市大山町1番30号 日本金属工業株式会社
相模原製造所内